

**PCT**

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM

Internationales Büro

INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation <sup>6</sup> : <b>H01M 8/04</b>	<b>A1</b>	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: <b>WO 98/45890</b> (43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 15. Oktober 1998 (15.10.98)
(21) Internationales Aktenzeichen: <b>PCT/EP97/01793</b> (22) Internationales Anmeldedatum: 10. April 1997 (10.04.97) (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): MAGNET-MOTOR GESELLSCHAFT FÜR MAGNETMOTORISCHE TECHNIK MBH [DE/DE]; Petersbrunnerstrasse 2, D-82319 Starnberg (DE). (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): KOSCHANY, Arthur [DE/DE]; Lindenbergrasse 56, D-82343 Pöcking (DE). (74) Anwalt: KLUNKER, SCHMITT-NILSON, HIRSCH; Winzerstrasse 106, D-80797 München (DE).	(81) Bestimmungsstaaten: CA, CN, IL, JP, US, eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).  Veröffentlicht Mit internationalem Recherchenbericht.	

(54) Title: METHOD FOR REGULATING MEMBRANE MOISTURE OF A POLYMER ELECTROLYTE FUEL CELL, AND A POLYMER ELECTROLYTE FUEL CELL

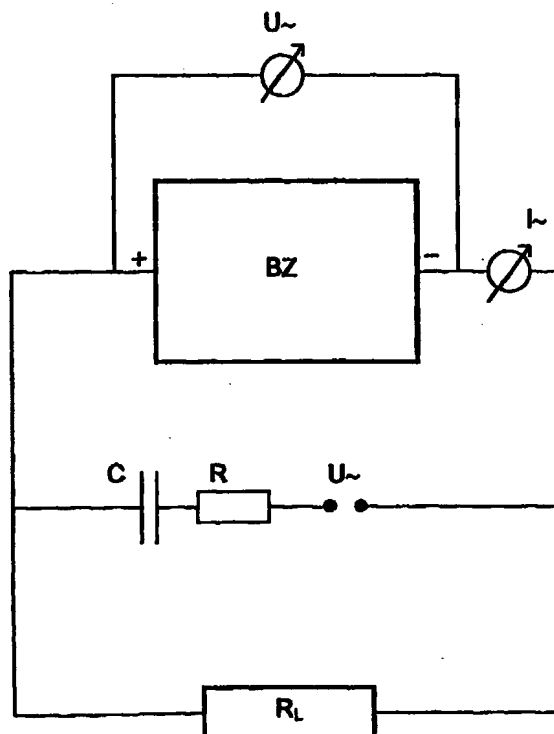
(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUM REGELN DER MEMBRANFEUCHTE EINER POLYMERELEKTROLYT-BRENNSTOFFZELLE UND POLYMERELEKTROLYT-BRENNSTOFFZELLE

(57) Abstract

The invention relates to a method for regulating the moisture of a polymer electrolyte fuel cell. The invention is characterized in that a measure for the membrane moisture (4) is electronically determined without using an auxiliary electrode, and that, in accordance with the membrane moisture thus calculated, the setting of the optimal membrane moisture is regulated.

(57) Zusammenfassung

Bei einer Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle wird die Membranfeuchte dergestalt geregelt, daß ein Maß für die Feuchte der Membran (4) ohne Verwendung einer Hilfselektrode elektronisch ermittelt wird und daß in Abhängigkeit von der ermittelten Membranfeuchte das Einstellen der optimalen Membranfeuchte geregelt wird.



# **LEDIGLICH ZUR INFORMATION**

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

## VERFAHREN ZUM REGELN DER MEMBRANFEUCHTE EINER POLYMERELEKTROLYT-BRENNSTOFFZELLE UND POLYMERELEKTROLYT-BRENNSTOFFZELLE

5

10

15

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zum Regeln der Membranfeuchte einer Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle und eine Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle mit einer Einrichtung zum Regeln der Membranfeuchte. Die Brennstoffzellen enthalten Feststoff-Polymer-Membranen als Elektrolyt, und verwenden als Brenngas bevorzugt Wasserstoff und als Oxidationsmittel Luft oder Sauerstoff unter niedrigem Druck.

20

25

30

35

Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen, wie sie üblicherweise zur Erzeugung von elektrischem Strom verwendet werden, enthalten eine Anode, eine Kathode und eine dazwischen angeordnete Ionenaustauschermembran. Eine Mehrzahl von Brennstoffzellen bildet einen Brennstoffzellenstapel, wobei die einzelnen Brennstoffzellen durch als Stromsammler wirkende bipolare Platten voneinander getrennt werden. Zur Erzeugung von Elektrizität wird ein Brenngas, z.B. Wasserstoff, in den Anodenbereich und ein Oxidationsmittel, z.B. Luft oder Sauerstoff, in den Kathodenbereich eingebracht. Anode und Kathode enthalten in den mit der Polymerelektrolytmembran in Kontakt stehenden Bereichen jeweils eine Katalysatorschicht. In der Anodenkatalysatorschicht wird der Brennstoff unter Bildung von Kationen und freien Elektronen oxidiert, in der Kathodenkatalysatorschicht wird das Oxidationsmittel durch Aufnahme von Elektronen reduziert. Die Kationen wandern durch die Ionenaustauschermembran zur Kathode und reagieren mit dem reduzierten Oxidationsmittel, wobei, wenn Wasserstoff als Brenngas und Sauerstoff als Oxidationsmittel verwendet werden, Wasser entsteht. Bei der Reaktion von Brenngas und Oxidationsmittel werden beträchtliche Wärmemengen frei, die mittels Kühlung abgeführt werden müssen. Die

- 2 -

Kühlung wurde bisher durch Kühlkanäle in den bipolaren Platten erreicht, die von deionisiertem Wasser durchströmt wurden.

Bei dieser Art von Kühlung ergeben sich enorme Materialprobleme, denn es werden typischerweise etwa 50 bis 300 bipolare Platten in Reihe geschaltet, das Kühlwasser verbindet also unterschiedliche Potentiale elektrisch miteinander. Die Folge sind Materialzersetzungen. Dementsprechend kommen als Werkstoff für die bipolaren Platten lediglich Graphit oder vergoldetes Metall in Frage.

Außerdem ist es erforderlich, die Polymermembran feucht zu halten, denn der Leitwert der Membran hängt stark von deren Wassergehalt ab. Um ein Austrocknen der Membran zu verhindern, war daher ein aufwendiges System zur Anfeuchtung der Reaktionsgase erforderlich.

Aufgabe der Erfindung ist es, eine Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle bzw. einen Polymerelektrolyt-Brennstoffzellenstapel bereitzustellen, wobei die Polymerelektrolytmembran einer Brennstoffzelle bei Betrieb stets den optimalen Feuchtegehalt aufweist.

Aufgabe der Erfindung ist es außerdem, ein Verfahren bereitzustellen, das es ermöglicht, die Polymerelektrolytmembran einer Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle bei Betrieb der Brennstoffzelle auf einem optimalen Feuchtegehalt zu halten.

Die Aufgabe wird gelöst durch das Verfahren zur Regelung der Membranfeuchte einer Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle gemäß Anspruch 1, die Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle gemäß Anspruch 7 und den Brennstoffzellenstapel aus einer Mehrzahl von Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen gemäß Anspruch 12.

Vorteilhafte Weiterbildungen der Erfindung sind in den entsprechenden Unteransprüchen angegeben.

Polymerelektrolytmembranen benötigen einen hohen Wassergehalt, um eine optimale Leitfähigkeit für  $H^+$ -Ionen zu gewährleisten. Der

- 3 -

Wassergehalt muß in der Regel durch Wasserzufuhr aufrechterhalten werden, da sonst die durch die Zelle strömenden Brenn- und Oxidationsmittel-Gasströme die Membrane austrocknen. Einer möglichen Austrocknung durch Zugabe eines Überschusses an Wasser zu begegnen, ist jedoch nicht sinnvoll, da Wasser in zu großen Mengen zum Fluten der Elektroden führt, d.h. die Poren der Elektroden verstopft. Ein einfaches Feststellen und Regeln der jeweils benötigten Wassermenge war bisher nicht möglich.

10 In den Zeichnungen zeigen:

Fig. 1 eine bevorzugte Ausführungsform einer erfindungsgemäßen Brennstoffzelle,

15 Fig. 2 eine Schaltung zur Messung der Impedanz einer Brennstoffzelle,

Fig. 3 die Abhängigkeit der Leitfähigkeit einer Nafion<sup>®</sup>-Membran vom Wassergehalt der Membran,

20 Fig. 4a eine schematische Darstellung der Steuerung des Wasserzusatzes,

25 Fig. 4b eine schematische Darstellung der Steuerung der Veränderung der Arbeitsbedingungen.

Eine Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle gemäß der Erfindung verwendet Luft oder Sauerstoff bei geringem Überdruck als Oxidationsmittel. Bevorzugt ist ein Überdruck von weniger als 2 bar, besonders bevorzugt von weniger als 0,5 bar. Die erforderliche Druckdifferenz kann auch durch Saugen erzielt werden. Als Brenngas wird bevorzugt Wasserstoff verwendet, aber auch die Verwendung anderer Brenngase ist prinzipiell möglich. Als Polymerelektrolytmembran wird bevorzugt Nafion<sup>®</sup> eingesetzt. Den einzelnen Brennstoffzellen eines Stapels wird Wasserstoff zugeführt und über Gaskanäle im Anodenbereich verteilt. Gleichzeitig wird Luft zugeführt und über Gaskanäle im

- 4 -

Kathodenbereich verteilt. Der Wasserstoff wandert zur Anodenkatalysatorschicht und bildet dort Kationen, welche durch den Elektrolyten, eine Protonenaustauschmembran, zur Kathode wandern. An der Kathode wandert Sauerstoff zur Kathodenkatalysatorschicht und wird dort reduziert. Bei der Reaktion mit den Kationen entsteht als Reaktionsprodukt Wasser. Durch die Reaktionswärme verdampft das gebildete Wasser, was eine gewisse Kühlung zur Folge hat. Der Kühleffekt ist jedoch zum einen nicht ausreichend, zum anderen veranlaßt die Membran im Laufe des Betriebs der Brennstoffzelle zunehmend an Feuchtigkeit.

Wie aus Fig. 3 für Nafion® NE 105 (30°C) ersichtlich ist, nimmt die Leitfähigkeit ionenleitender Membranen mit dem H<sub>2</sub>O-Gehalt zu.  $N(H_2O)/N(SO_3H)$  bezeichnet die Anzahl der Wassermoleküle pro Sulfonsäurerest der Membran.

Eine Verringerung des Feuchtigkeitsgehalts der festen Polymerelektrolytmembran einer Brennstoffzelle hat daher zur Folge, daß ihr innerer Widerstand ansteigt, das heißt ihr Leitwert sinkt. Der Leitwert der Membran hängt extrem von ihrem Wassergehalt ab. Wesentlich für eine effiziente Arbeitsweise einer Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle ist es daher, daß die Polymerelektrolytmembran stets die den jeweiligen Arbeitsbedingungen (Temperatur, Last, Luftzahl) entsprechende optimale Feuchte aufweist.

Zur Aufrechterhaltung der optimalen Feuchte kann erfindungsgemäß während des Betriebs der Brennstoffzelle, vorzugsweise regelmäßig oder kontinuierlich, bestimmt werden, ob die Membran optimal befeuchtet ist oder ob Maßnahmen zum Einstellen der optimalen Membranfeuchte erforderlich sind.

Das Einstellen der optimalen Membranfeuchte kann beispielweise durch Zugabe der erforderlichen Wassermenge in flüssigem oder gasförmigem Zustand erfolgen. Bevorzugt wird das Wasser einem der Reaktionsgase oder beiden Reaktionsgasen zugesetzt. Weitere Möglichkeiten, die Membran auf einem optimalen Feuchtegehalt zu halten, bestehen darin,

- 5 -

die Arbeitsbedingungen an den ermittelten Feuchtegehalt anzupassen. Die dazu vor allem in Frage kommenden Arbeitsbedingungen sind Elektrodentemperaturen, Volumenströme der Reaktionsgase und Last der Brennstoffzelle. Erfindungsgemäß erfolgt das Einstellen der optimalen Membranfeuchte daher bevorzugt folgendermaßen: Nach der Ermittlung, in welchem Ausmaß die tatsächliche Feuchte von der Sollfeuchte abweicht, wird eine bestimmte Menge Wasser eingespeist oder die Temperatur mindestens einer der Elektroden oder der Volumenstrom von Brenngas und/oder Oxidationsmittel dergestalt verändert, daß die tatsächliche Feuchte der Membran der bei den veränderten Arbeitsbedingungen optimalen Feuchte der Membran entspricht. Auch eine Veränderung der Last ist möglich, um zu erreichen, daß die optimale Membranfeuchte im wesentlichen in Übereinstimmung mit der tatsächlichen Membranfeuchte gebracht wird. Erfindungsgemäß können auch mehrere der obengenannten Maßnahmen kombiniert werden, um das Einstellen der optimalen Membranfeuchte zu bewirken.

Im folgenden wird die Erfindung anhand der Regelung des Wasserzusatzes beschrieben.

Grundsätzlich kann die Menge des Wasserzusatzes stark variieren. Sie hängt von den jeweiligen Arbeitsbedingungen der Brennstoffzelle ab, und sie hängt insbesondere auch von der Art der Kühlung der Brennstoffzelle ab. Häufig wird Brennstoffzellen zur Kühlung Wasser zugeführt, das, abhängig von der Konstruktion der Brennstoffzellen, in gewissem Ausmaß auch die Membran mitbefeuchtet. Dann muß in der Regel weniger zusätzliches Wasser zugeführt werden als bei Zellen mit beispielsweise ausschließlich Luftkühlung.

Der Leitwert der Membran hängt von ihrem Wassergehalt ab. Während des Betriebs einer Brennstoffzelle kann der Leitwert der Membran allerdings nicht direkt gemessen werden. Erfindungsgemäß wird ein Maß für die Feuchte der Membran, vorzugsweise die Impedanz der Brennstoffzelle (Betrag der Impedanz oder besonders bevorzugt Realteil der Impedanz), ermittelt. Da der Leitwert der Membran eine stetige,

- 6 -

monotone Funktion dieser Größen ist, kann die erforderliche Wassermenge auch auf der Grundlage der Impedanz geregelt werden.

5 Eine mögliche Schaltung zur Messung der Impedanz einer Brennstoffzelle zeigt Fig. 2.

10 Die erfindungsgemäße Bestimmung des Maßes für die Feuchte der Membran erfordert keine Hilfselektroden, d.h., sie bedient sich der Arbeitselektroden. Ein Eingriff in die Zelle selbst ist nicht erforderlich.

15 Die direkte Messung des Leitwerts und damit des Feuchtegehalts einer Polymerelektrolytmembran einer Brennstoffzelle mittels Bestimmung der Impedanz erfolgt durch Modulation der Zellspannung mit einem Wechsignalsignal mit einer Frequenz von 1 bis 20 kHz. Bei einem Brennstoffzellenstapel wird geeigneterweise der durchschnittliche Feuchtegehalt mehrerer Membranen gemessen. Der Quotient aus Wechsignalspannung und der resultierenden Stromantwort ist ein Maß für die Feuchte. In Fig. 2 stellt BZ die Brennstoffzelle und  $R_L$  den Lastwiderstand dar. Dem Lastwiderstand parallel geschaltet ist eine 20 Anordnung aus Kondensator C, Widerstand R und Wechsignalspannungsquelle U, die geeignet ist, kleine Wechsignalspannungen (Größenordnung von etwa 10 mV) und große Ströme (Größenordnung von etwa 10 A) zu erzeugen. Die Spannung der Brennstoffzelle wird durch das Wechsignalsignal (etwa 1-20 kHz) der Wechsignalspannungsquelle 25 moduliert. Der Wechsignalspannungsanteil U bewirkt eine Überlagerung des Brennstoffzellenstroms mit einem Wechselstrom I. Der Quotient aus Wechsignalspannung und Wechselstrom ist ein Maß für die Impedanz der Brennstoffzelle und damit ein Maß für die Feuchte der Polymerelektrolytmembran, bzw. für die erforderliche Wassermenge, die 30 zugeführt werden muß.

35 Der Betrag der Impedanz hängt allerdings, außer von der Leitfähigkeit der Membran, von weiteren Bestimmungsgrößen ab, nämlich von der Größe der Katalysatoroberfläche, die mit der Membran in Berührung steht, vom Ohmschen Widerstand der Elektroden und der Vergiftung der Membran durch Fremdionen. Diese Größen unterliegen im Laufe der



- 7 -

Lebensdauer einer Brennstoffzelle einer gewissen Veränderung, wobei die Abweichungen durch Veränderung des Ohmschen Widerstands der Elektroden und durch Vergiftung der Membran durch Fremdionen in der Regel vernachlässigbar gering sind. Im Laufe der Lebensdauer einer Brennstoffzelle kann also der Betrag der Impedanz, der unter gegebenen Betriebsbedingungen der optimalen Membranfeuchte entspricht (Sollwert des Betrags der Impedanz), variieren. Daher sollte der einzuhaltende Sollwert des Betrags der Impedanz im Zuge anfallender Wartungsarbeiten jeweils neu eingestellt werden. Der neue Sollwert wird dabei durch Maximierung der Leistung der Brennstoffzelle bestimmt. Während des Betriebes der Brennstoffzelle kann der optimale Sollwert alternativ durch Fuzzy logic oder ähnliche, dem Fachmann geläufige Methoden, entsprechend den veränderten Verhältnissen neu angepaßt werden.

Ein von der Katalysatoroberfläche (deren Veränderung im wesentlichen verantwortlich ist für die Veränderung des Sollwerts der Impedanz) weitgehend unabhängiges Maß für die Leitfähigkeit der Membrane erhält man, wenn neben dem Betrag der Impedanz auch ihr Phasenwinkel in Betracht gezogen wird. Betrachtet man den hieraus elektronisch bestimmten Realteil der Impedanz als Regelgröße, so kann sogar über die gesamte Lebensdauer der Brennstoffzelle ein einziger Sollwert verwendet werden.

Während des Betriebs der Brennstoffzellen kann die Impedanz (Betrag oder Realteil) kontinuierlich oder in regelmäßigen Abständen gemessen werden. Errechnet sich aus der Messung ein zu geringer Leitwert der Membran bzw. der Membranen, so wird dem System Wasser zugeführt, beispielsweise durch auf übliche Weise elektronisch gesteuertes Öffnen von Wassereinlaßventilen, bis der Sollwert der Impedanz wieder erreicht ist, oder es wird eine oder mehrere der Arbeitsbedingungen entsprechend variiert.

Bei Brennstoffzellen-Stapeln mit einer Mehrzahl an Brennstoffzellen ist es günstig, den Betrag oder den Realteil der Impedanz nicht für jede Membran einzeln zu bestimmen, sondern Durchschnittswerte für eine

- 8 -

Mehrzahl von Zellen des Stapels oder sogar für alle Zellen des Stapels gemeinsam zu bestimmen und den erforderlichen Wasserzusatz danach zu richten.

5 Fig. 4a zeigt schematisch ein spezielles Beispiel für die Steuerung der Einbringung von Membranbefeuchtungswasser in einen Brennstoffzellenstapel 20, der mit Wasserstoff 21 und Luft 22 betrieben wird. Wird eine zu geringe Membranfeuchte gemessen, wird über das Ventil 25 Wasser aus dem Wasservorratsbehälter 23 in den Wasserstoffstrom 21 eingespeist, bis die erforderliche Membranfeuchte erreicht ist. Öffnen und Schließen des Ventils 25 erfolgt durch das Steuergerät 24.

15 Fig. 4b zeigt schematisch ein spezielles Beispiel für die Steuerung der Veränderung von Arbeitsbedingungen (Luft-Volumenstrom und Last) bei einem Brennstoffzellenstapel 20, der mit Wasserstoff 21 und Luft 22 betrieben wird. Wird ein nicht optimaler Membranfeuchtwert gemessen, steuert das Steuergerät 30 je nach Bedarf das stärkere Öffnen oder Schließen des Ventils 31, bis der erforderliche Luft-Volumenstrom erreicht ist. Alternativ kann auch der Wasserstoff-Volumenstrom 21 oder beide Ströme verändert werden. Insbesondere bei luftgekühlten Brennstoffzellen ist über die Steuerung des Luftstroms 22 auch die Steuerung der Temperatur möglich. Eine weitere Alternative ergibt sich in einer luftstromunabhängigen Variation der Temperatur der Brennstoffzelle (z. B. Bei Wasserkühlung), die ebenfalls eine Variation des Feuchtegehalts der Membran bewirkt. Eine weitere Möglichkeit ist die Steuerung der Last 36 mittels Steuergerät 35.

30 Unabhängig von der Art und Weise der Bestimmung des optimalen Wassergehalts der Membrane und der Regelung der Wassereinspeisung ist es erfindungsgemäß möglich, Membranbefeuchtungswasser gleichzeitig zur Kühlung der Brennstoffzelle zu verwenden und damit eine ausreichende Kühlung zu gewährleisten. Dies wird erfindungsgemäß dadurch erreicht, daß bei einer Brennstoffzelle, die wie oben ausgeführt konzipiert ist, in die Gaskanäle für die Verbrennungsluft ionenfreies Wasser in flüssiger Form unmittelbar eingebracht wird. Alternativ kann

35

- 9 -

das Wasser auch unmittelbar in die Gaskanäle für das Brenngas eingebracht werden.

5 Eine bewährte Lösung ist das Einbringen von Wasser sowohl im Kathoden- als auch im Anodenbereich, insbesondere bei Betriebsbedingungen, die ein starkes Austrocknen der Membran bewirken.

10 Das flüssige Wasser verdampft in der heißen Brennstoffzelle und bewirkt durch die stattfindende Phasenumwandlung eine effiziente Kühlung der Zelle. Außerdem dringt es in die Polymerelektrolytmembran ein und hält sie feucht.

15 Die einfachste Möglichkeit, die erforderliche Wassermenge dem Luftstrom bzw. dem Luft- und/oder Wasserstoffstrom beizufügen, besteht darin, das Wasser mittels einer Dosierpumpe in zahlreichen dünnen Leitungen, z.B. Kapillaren, in die Gaskanäle einzubringen. Dabei findet keine nennenswerte Durchmischung des Wassers mit der Luft bzw. dem Brenngas statt, die für die Verdampfung zur Verfügung  
20 stehende freie Wasseroberfläche ist also relativ gering.

Eine erheblich größere freie Wasseroberfläche und damit eine raschere Befeuchtung der Membran und eine effizientere Kühlung erreicht man, wenn man die erforderliche Wassermenge den Reaktionsgasströmen in  
25 durchmischter Form, also als Aerosol beifügt. Das Wasser in Luft Aerosol und gegebenenfalls das Wasser in Brenngas Aerosol enthalten Wasser in Form von 2 bis 20  $\mu\text{m}$  großen Tröpfchen, die eine rasche Verdunstung oder Verdampfung gewährleisten. Das Aerosol läßt sich beispielsweise mit Hilfe von Ultraschall-Zerstäubern oder Düsen  
30 herstellen. Die einfachste und gleichzeitig am wenigsten energieaufwendige Erzeugung des Aerosols erfolgt mittels Ultraschall-Zerstäubern bei Frequenzen von mindestens 100 kHz.

35 Eine besonders vorteilhafte Ausführungsform der Erfindung stellt die Ausgestaltung der Kanäle zur Aufnahme von Wasser in Luft Aerosol bzw. Wasser-in-Brenngas-Aerosol dar, wie sie in Fig. 1 gezeigt sind. In

- 10 -

5 einem Brennstoffzellenstapel wird jede Brennstoffzelle anodenseitig und kathodenseitig jeweils von einer bipolaren Platte 10, 6 begrenzt. Die anodenseitige bipolare Platte ist gleichzeitig die kathodenseitige bipolare Platte einer Nachbarzelle und die kathodenseitige bipolare Platte gleichzeitig die anodenseitige bipolare Platte der anderen Nachbarzelle.

10 Die bipolare Platte besitzt zumindest in einem Teilbereich Wellblechstruktur, sie weist also im Wechsel Erhebungen und Vertiefungen auf. Eine Oberfläche der bipolaren Platte 6 berührt mit ihren Erhebungen 7 den Kathodenbereich 2 der Brennstoffzelle, wodurch die jeweils zwischen zwei benachbarten Erhebungen gelegenen Vertiefungen 8 mit dem Kathodenbereich Kanäle 5 zur Aufnahme von Wasser in Luft Aerosol bilden. In gleicher Weise berührt die bipolare  
15 Platte 10 mit einer Oberfläche den Anodenbereich 3 der Zelle, so daß die jeweils zwischen zwei benachbarten anodenseitigen Erhebungen 11 gelegenen Vertiefungen 12 mit dem Anodenbereich 3 ebenfalls Kanäle 9 bilden. Diese können zur Aufnahme von Wasser in Brenngas Aerosol dienen.

20 Bei der in Fig. 1 gezeigten Ausführungsform wird Wasserstoff als Brenngas senkrecht zur Plattenfläche durch Bohrungen eingespeist. Der Wasserstoff tritt zunächst in den mit der Einspeiseöffnung in Verbindung stehenden Kanal 9 ein und diffundiert bzw. strömt von dort aus in den benachbarten porösen Anodenbereich. Von hier aus diffundiert der  
25 Wasserstoff zum Teil zur Anodenkatalysatorschicht, zum Teil in der Ebene des Anodenbereichs in weitere Gaskanäle 9. Wegen der hervorragenden Diffusionseigenschaften von Wasserstoff wird dabei problemlos der gesamte Anodenbereich gleichmäßig mit Wasserstoff versorgt.

30 Soll zusammen mit dem Brenngas auch Kühlwasser eingespeist werden, ist es in der Regel vorteilhafter, die gleiche Art der Zuführung wie im Kathodenbereich zu wählen, also Brennstoff und Wasser in jeden einzelnen Kanal 9 einzuspeisen. Wegen der im Vergleich zu Wasserstoff schlechten Diffusionseigenschaften von Wasser würde sonst nur wenig  
35 Wasser in die Anode eindringen, der Kühleffekt wäre also gering.

Die Konstruktion weist keinerlei separate Kühlkanäle auf. Ein besonderer Vorteil liegt insbesondere darin, daß der Weg des Aerosols durch die Kanäle 5 der Zelle eine Gerade darstellt. Die Wellblechstruktur der bipolaren Platte mit geraden Gaswegen ermöglicht es, Niederschläge des Aerosols zu minimieren und die notwendigen Volumenströme bei kleinem Druckabfall zu leiten.

Es kommt nicht, wie bei porösen Platten häufig der Fall, zu einem Fluten und Verstopfen der Wasserleitungswege durch Wassertröpfchen. Außerdem ist die "Wellblechplatte" fertigungstechnisch sehr einfach und preisgünstig herstellbar.

Anoden- und Kathodenbereich sind jeweils als einen geeigneten Katalysator tragende Diffusionsschichten ausgebildet, die an den entgegengesetzten Seiten der Polymerelektrolytmembran 4 angeordnet sind.

Luftdichtungen 15, 15' und Wasserstoffdichtungen 16, 16' schließen die Zelle gasdicht ab.

Um die Verweilzeit des Wassers in der Zelle zu erhöhen und dadurch eine vollständige Verdunstung zu ermöglichen, können die Wandungen der Gaskanäle 5 und/oder der Gaskanäle 9 mit einer hydrophilen saugfähigen Schicht überzogen werden, beispielsweise mit Filz. Die hydrophile, saugfähige Schicht verteilt die eingebrachte Wassermenge besonders gleichmäßig und hält sie bis zur Verdunstung fest.

Die zur Erreichung einer optimalen Membranbefeuchtung erforderliche Wassermenge kann, wie vorstehend ausgeführt, auf elektronischem Wege bestimmt und geregelt werden. Die in die Brennstoffzelle eingebrachte Wassermenge kann zwei Aufgaben erfüllen: Kühlung der Zelle und Befeuchtung der Membran. Für eine Regelung der notwendigen Wassermenge wird jedoch nur die Einstellung der geeigneten Membranfeuchte berücksichtigt. In Abhängigkeit von den Parametern Temperatur, Last, Luftzahl u.ä. wird die optimale

- 12 -

- 5 Membranfeuchte und damit der optimale Leitwert der Membran experimentell bestimmt. Der Wasserzusatz variiert in Abhängigkeit von dem zu erreichenden Leitwert. Die Zelltemperatur variiert in Abhängigkeit von den Betriebsbedingungen in weiten Grenzen. Solange ausreichend Wasser eingebracht wird, um eine optimale Membranfeuchte sicherzustellen, wird jedoch auch eine ausreichende Kühlwirkung gewährleistet. Die Kühlung kann jedoch auch anders sichergestellt werden, beispielsweise durch ausreichende Luftströmung.
- 10 Um bei einer Brennstoffzelle oder einem Brennstoffzellenstapel den Feuchtegehalt der Reaktionsgase und ihre Temperatur längs der Strömungsrichtung möglichst konstant zu halten, kann man das Reaktionsgas, insbesondere die Luft, den Zellstapel mehrmals passieren lassen. Dies geschieht durch Rückführung des die Brennstoffzellen
- 15 verlassenden Luft/Wasser-Gemisches bzw. des die Brennstoffzellen verlassenden Brenngas/Wasser-Gemisches in den entsprechenden Ansaugstrom.
- 20 Erfindungsgemäß kann also bei einer Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle durch Einbringen von ionenfreiem Wasser in flüssiger Form direkt in die Gaskanäle der Verbrennungsluft und/oder des Brenngases gleichzeitig die Einhaltung eines optimalen Membranfeuchte und damit eines optimalen Leitwerts der Membran sowie eine ausreichende Kühlung der Brennstoffzelle gewährleistet werden.
- 25

-13-

Ansprüche

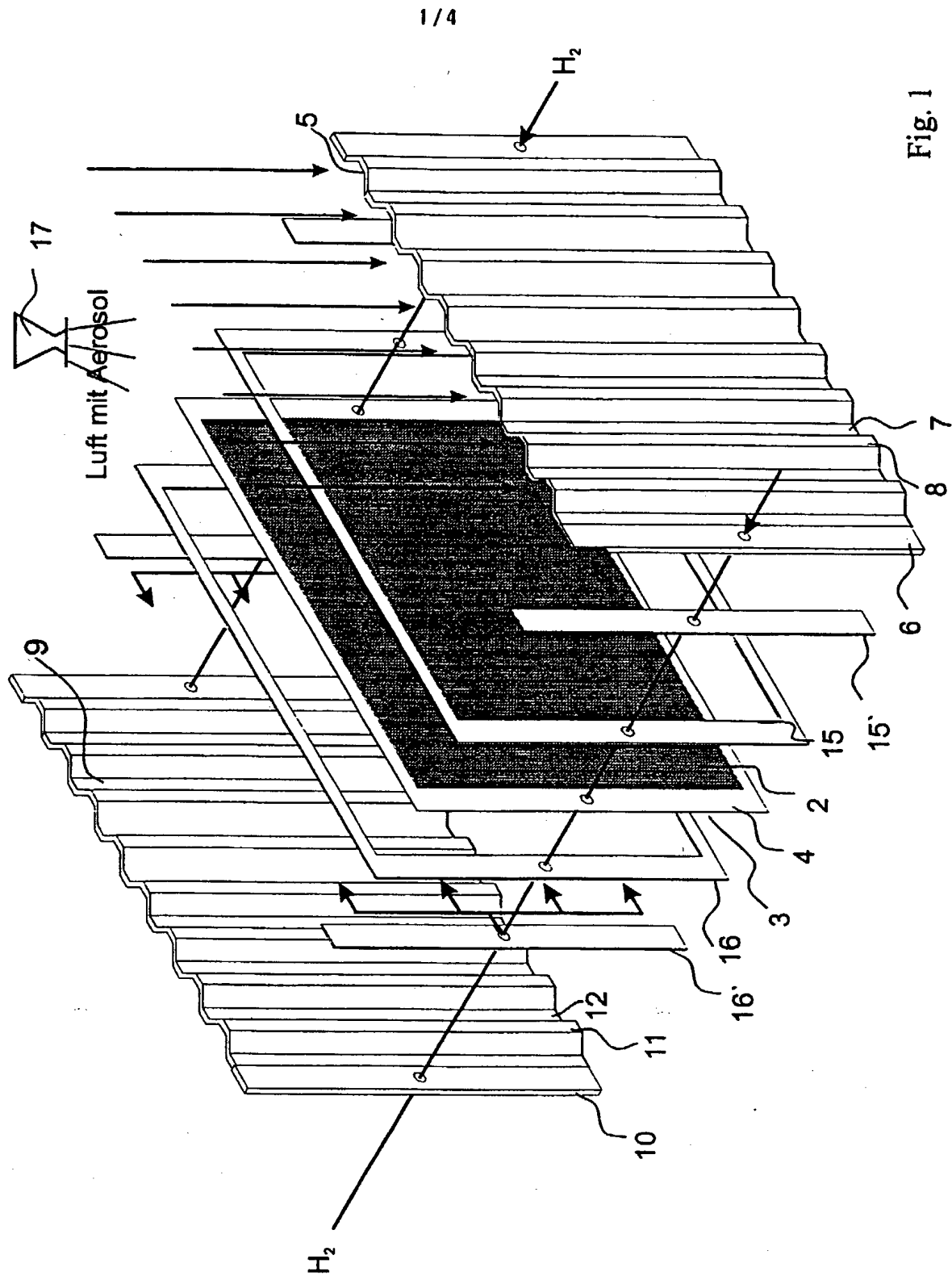
5

1. Verfahren zur Regelung der Membranfeuchte einer Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß ein Maß für die Feuchte der Membran (4) ohne Verwendung einer Hilfselektrode elektronisch ermittelt wird und daß in  
10 Abhängigkeit von der ermittelten Membranfeuchte das Einstellen der optimalen Membranfeuchte geregelt wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1,  
dadurch gekennzeichnet,  
15 daß das Ermitteln durch Modulation der Zellspannung mit einem Wechselsignal erfolgt.
3. Verfahren nach Anspruch 2,  
dadurch gekennzeichnet,  
20 daß eine Impedanzermittlung der Brennstoffzelle (1) erfolgt.
4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3,  
dadurch gekennzeichnet,  
25 daß das Einstellen der optimalen Membranfeuchte durch Einbringen der erforderlichen Wassermenge und/oder Veränderung der Elektrodentemperatur und/oder Veränderung des Volumenstroms mindestens eines der Reaktionsgase und/oder Veränderung der Last erfolgt.
- 30 5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß zur gleichzeitigen Kühlung der Brennstoffzelle und Befeuchtung der Polymerelektrolytmembran eine erforderliche Wassermenge in  
35 flüssiger Form unmittelbar in die Gaskanäle der Luft und/oder die Gaskanäle des Brenngases eingebracht wird.

6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß bei einem Brennstoffzellenstapel mit einer Mehrzahl von  
5 Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen ein Maß für die durchschnittliche  
Feuchte mehrerer Membranen elektronisch ermittelt wird.
7. Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle (1) mit einem Anodenbereich (3),  
einem Kathodenbereich (2), einer dazwischen angeordneten  
10 Polymerelektrolytmembran (4), einer Einrichtung zum Zuführen von  
Luft als Oxidationsmittel zum Kathodenbereich, Gaskanälen (5) zum  
Verteilen der Luft im Kathodenbereich, einer Einrichtung zum  
Zuführen von Brenngas zum Anodenbereich, und Gaskanälen (9)  
zum Verteilen des Brenngases im Anodenbereich,  
15 gekennzeichnet durch  
eine elektronische Einrichtung zum Ermitteln eines Maßes für die  
Feuchte der Membran ohne Verwendung einer Hilfselektrode und  
eine Einrichtung zum Regeln des Einstellens der optimalen  
Membranfeuchte in Abhängigkeit von der ermittelten  
20 Membranfeuchte.
8. Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle nach Anspruch 7,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß die elektronische Einrichtung für das Ermitteln durch  
25 Modulation der Zellspannung mit einem Wechselsignal ausgebildet  
ist.
9. Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle nach Anspruch 8,  
dadurch gekennzeichnet,  
30 daß die elektronische Einrichtung für Impedanzermittlung der  
Brennstoffzelle (1) ausgebildet ist.



10. Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle nach einem der Ansprüche 7 bis 9,  
dadurch gekennzeichnet,  
5 daß die Einrichtung zum Regeln des Einstellens der optimalen Membranfeuchte als Einrichtung zum Regeln des Einbringens der erforderlichen Wassermenge und/oder zur Veränderung der Elektrodentemperatur und/oder zur Veränderung des Volumenstroms mindestens eines der Reaktionsgase und/oder zur Veränderung der  
10 Last ausgebildet ist.
11. Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle nach einem der Ansprüche 7 bis 10,  
außerdem gekennzeichnet durch  
15 eine Einrichtung zum Einbringen von Wasser in flüssiger Form unmittelbar in die Gaskanäle (5) der Luft im Kathodenbereich und/oder die Gaskanäle (9) des Brenngases im Anodenbereich, sowie durch die Zelle anodenseitig und/oder kathodenseitig begrenzende bipolare Platten (10, 6).
- 20 12. Brennstoffzellenstapel aus einer Mehrzahl von Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen gemäß einem der Ansprüche 7 bis 11,  
gekennzeichnet durch  
25 eine elektronische Einrichtung zum Ermitteln eines Maßes für die durchschnittliche Feuchte mehrerer Membranen.



2/4

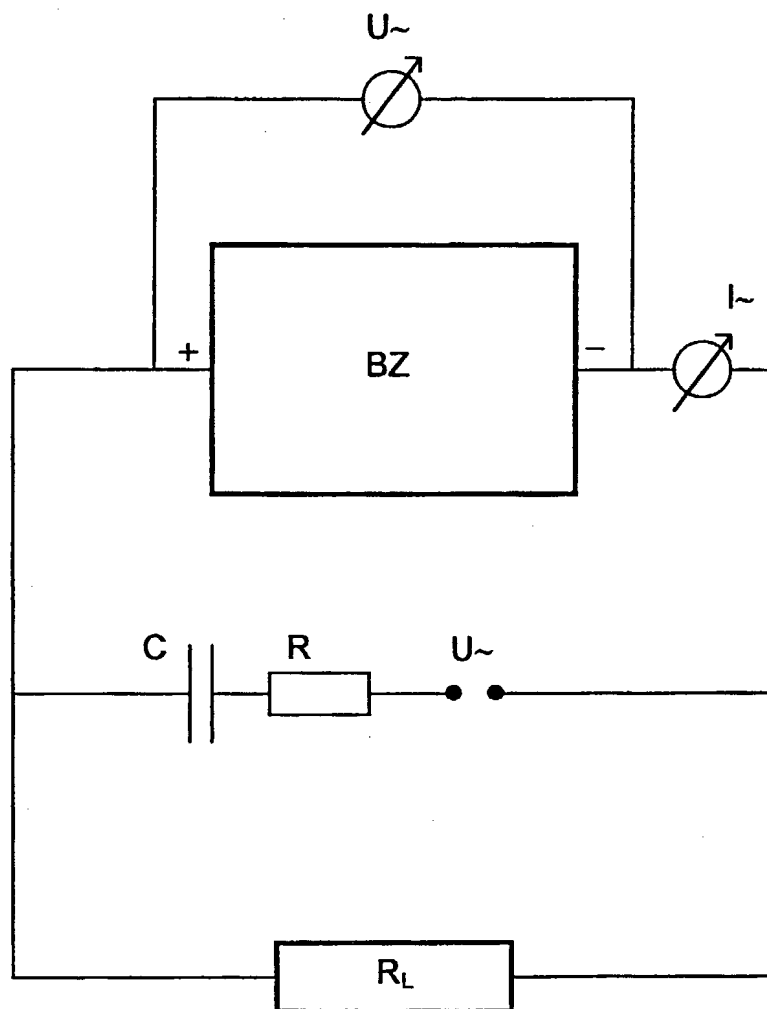


Fig. 2

3/4

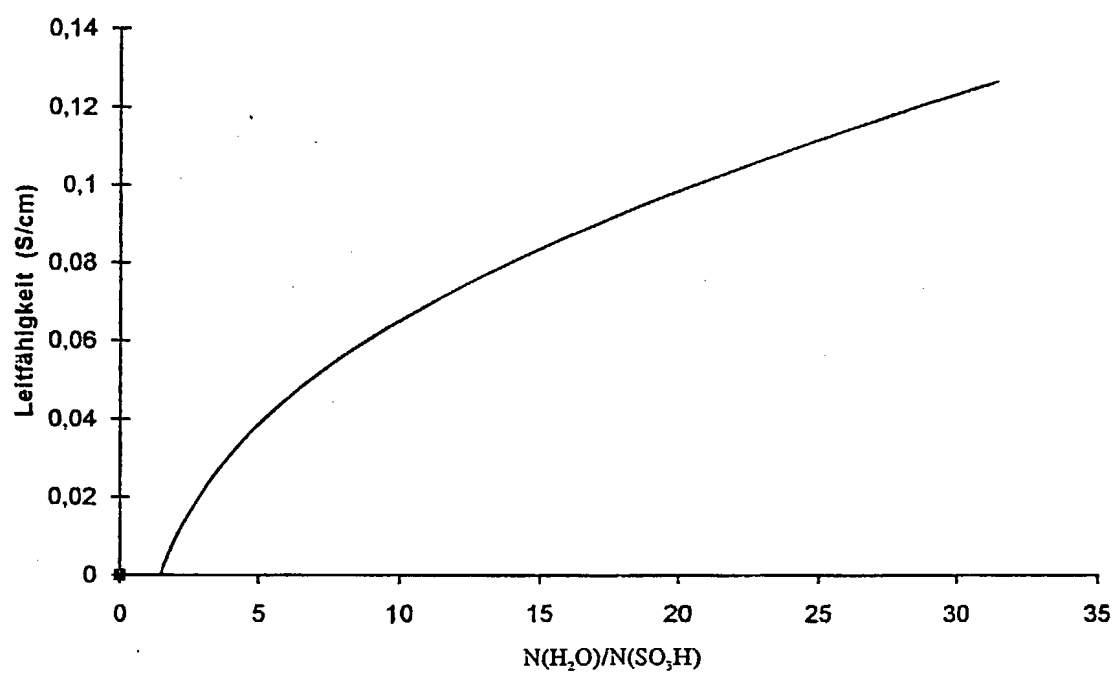


Fig. 3

4 / 4

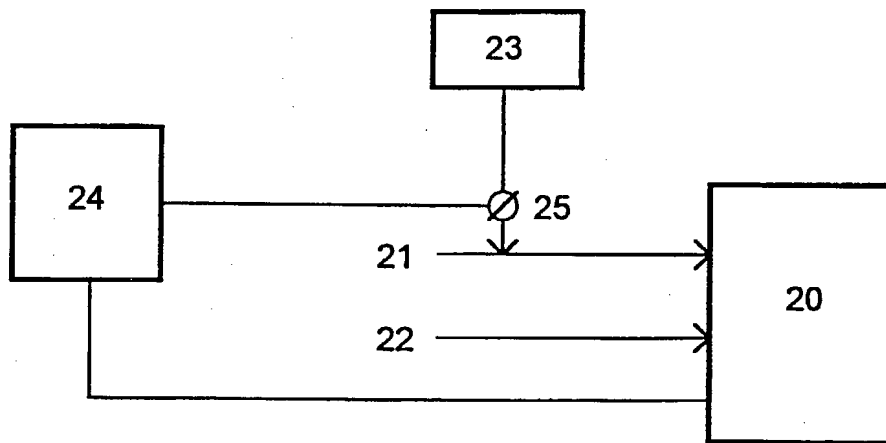


Fig. 4a

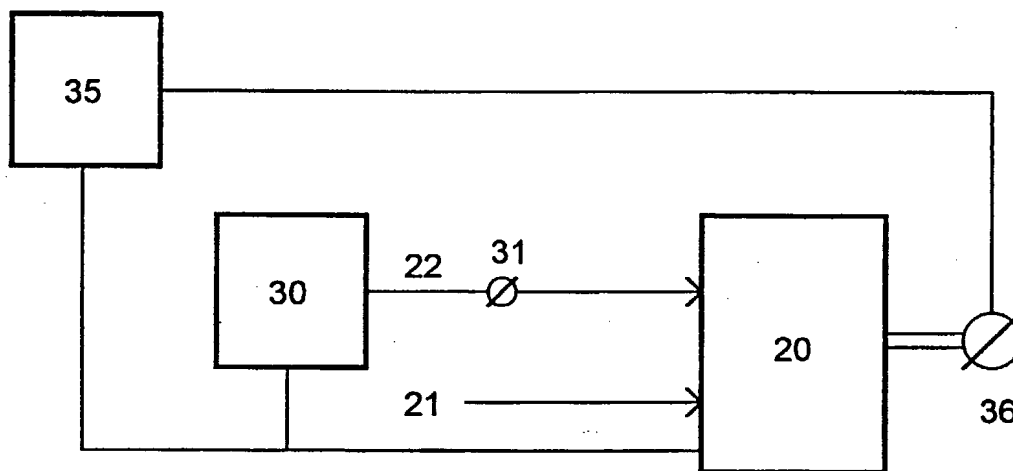


Fig. 4b

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 97/01793

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 6 H01M8/04

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 6 H01M

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	<p>T.E. SPRINGER ET AL: "Polymer Electrolyte Fuel Cell Model"</p> <p>JOURNAL OF THE ELECTROCHEMICAL SOCIETY, vol. 138, no. 8, August 1991, MANCHESTER, NEW HAMPSHIRE US, pages 2334-2342, XP002051330</p> <p>see page 2340, left-hand column, paragraph 4</p> <p>see page 2339, left-hand column, last paragraph - right-hand column, paragraph 1</p> <p style="text-align: center;">--- -/--</p>	1-5, 7-11

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

### \* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"Z" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

7 January 1998

Date of mailing of the international search report

20/01/1998

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

D'hondt, J

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Inte. onal Application No  
PCT/EP 97/01793

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	SARA D. FLINT ET AL: "Investigation of radiation-grafted PVDF-g-polystyrene-sulfonic-acid ion exchange membranes for use in hydrogen oxygen fuel cells" SOLID STATE IONICS - PROCEEDINGS OF THE EIGHT INTERNATIONAL CONFERENCE STOREFJELL, NORWAY, AUGUST 18-23, 1996, vol. 97, no. 1-4, May 1997, AMSTERDAM NL, pages 299-307, XP002051333 see page 301, left-hand column, last paragraph - right-hand column, paragraph 1 ---	1-5,7-11
Y	EP 0 743 693 A (SANYO ELECTRIC CO) 20 November 1996 see claims 1-6 see column 1, line 28 - line 57 see column 4, line 22 - line 59 see column 6, line 41 - column 8, line 19 ---	1-5,7-11
Y	EP 0 316 626 A (DORNIER GMBH) 24 May 1989 see column 3, last line - column 4, last line; claims 1,2,5,7; figures 1-3 see column 2, line 48 - line 54 ---	1-5,7-11
Y	NGUYEN T V ET AL: "A WATER AND HEAT MANAGEMENT MODEL FOR PROTON-EXCHANGE-MEMBRANE FUELS CELLS" JOURNAL OF THE ELECTROCHEMICAL SOCIETY, vol. 140, no. 8, 1 August 1993, pages 2178-2186, XP000403645 see page 2182, left-hand column, last paragraph - right-hand column, paragraph 2; figure 3 see page 2184, left-hand column, paragraph 2 ---	1-5,7-11
A	THOMAS A. ZAWODZINSKI ET AL: "A Comparative Study of Water Uptake By and Transport Through Ionomeric Fuel Cell Membranes" JOURNAL OF THE ELECTROCHEMICAL SOCIETY, vol. 140, no. 7, July 1993, MANCHESTER, NEW HAMPSHIRE US, pages 1981-1985, XP002051331 see page 1982, left-hand column, paragraph 5 see page 1981, left-hand column, paragraph 1 --- -/-	1,7

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Inter. Appl. Application No

PCT/EP 97/01793

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	<p>THOMAS A. ZAWODZINSKI ET AL: "Water Uptake by and Transport Through Nafion 117 Membranes"</p> <p>JOURNAL OF THE ELECTROCHEMICAL SOCIETY, vol. 140, no. 4, April 1993, MANCHESTER, NEW HAMPSHIRE US, pages 1041-1047, XP002051332</p> <p>see page 1041, left-hand column, paragraph 1</p> <p>see page 1042, right-hand column, paragraph 2</p> <p>see page 1043, right-hand column, paragraph 2</p>	1-3,7-9
A	<p>US 5 468 574 A (EHRENBERG SCOTT G ET AL)</p> <p>21 November 1995</p> <p>see column 10, line 5 - line 26</p>	1-3,7-9
A	<p>ZAHREDDINE C ET AL: "THE CONDUCTIVITY OF THE NOVEL PTFE POLYMER ELECTROLYTES" SOLID STATE IONICS, vol. 58, no. 1/02, 1 November 1992, pages 185-187, XP000414571</p> <p>see page 185, left-hand column, paragraph 1</p> <p>see page 185, right-hand column, paragraph 2</p> <p>see page 186, left-hand column, paragraph 2</p>	1,7
A	<p>ROTA M ET AL: "IN-SITU MEMBRANE RESISTANCE MEASUREMENTS IN PEFC AS AN INDICATION OF INHOMOGENEOUS WATER DISTRIBUTION IN THE MEMBRANE" EXTENDED ABSTRACTS SPRING MEETING MAY 21/26 ST LOUIS MISSOURI US, vol. 95/1, 1995, page 718 XP000551381</p> <p>see page 718, left-hand column, paragraph 2</p>	1,7
A	<p>BERNARDI D M: "WATER-BALANCE CALCULATIONS FOR SOLID-POLYMER-ELECTROLYTE FUEL CELLS" JOURNAL OF THE ELECTROCHEMICAL SOCIETY, vol. 137, no. 11, November 1990, pages 3344-3350, XP000606168</p> <p>see page 3349, right-hand column, last paragraph</p>	4
A	<p>PATENT ABSTRACTS OF JAPAN</p> <p>vol. 013, no. 220 (E-762), 23 May 1989</p> <p>-&amp; JP 01 031353 A (SANYO ELECTRIC CO LTD), 1 February 1989,</p> <p>see abstract</p>	1

-/--



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 97/01793

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
E	DE 196 48 995 A (MAGNET MOTOR GMBH) 10 April 1997 see the whole document ---	1-12
E	DE 196 41 143 A (MAGNET MOTOR GMBH) 17 April 1997 see claims 1,19,20,22-30 -----	1-12

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 97/01793

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0743693 A	20-11-96	JP 8315839 A	29-11-96
		CA 2171380 A	19-11-96
EP 0316626 A	24-05-89	DE 3738370 C	13-04-89
		DE 3887456 D	10-03-94
US 5468574 A	21-11-95	AU 2644395 A	18-12-95
		CA 2190848 A	30-11-95
		EP 0763070 A	19-03-97
		WO 9532236 A	30-11-95
		US 5679482 A	21-10-97
DE 19648995 A	10-04-97	DE 19641143 A	17-04-97
DE 19641143 A	17-04-97	DE 19648995 A	10-04-97

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 97/01793

## A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 6 H01M8/04

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 6 H01M

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	T.E.SPRINGER ET AL: "Polymer Electrolyte Fuel Cell Model" JOURNAL OF THE ELECTROCHEMICAL SOCIETY, Bd. 138, Nr. 8, August 1991, MANCHESTER, NEW HAMPSHIRE US, Seiten 2334-2342, XP002051330 siehe Seite 2340, linke Spalte, Absatz 4 siehe Seite 2339, linke Spalte, letzter Absatz - rechte Spalte, Absatz 1 ----- -/-	1-5,7-11

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen:

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

7. Januar 1998

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

20/01/1998

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

D'hondt, J

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	SARA D. FLINT ET AL: "Investigation of radiation-grafted PVDF-g-polystyrene-sulfonic-acid ion exchange membranes for use in hydrogen oxygen fuel cells" SOLID STATE IONICS - PROCEEDINGS OF THE EIGHT INTERNATIONAL CONFERENCE STOREFJELL, NORWAY, AUGUST 18-23, 1996, Bd. 97, Nr. 1-4, Mai 1997, AMSTERDAM NL, Seiten 299-307, XP002051333 siehe Seite 301, linke Spalte, letzter Absatz - rechte Spalte, Absatz 1 ---	1-5,7-11
Y	EP 0 743 693 A (SANYO ELECTRIC CO) 20. November 1996 siehe Ansprüche 1-6 siehe Spalte 1, Zeile 28 - Zeile 57 siehe Spalte 4, Zeile 22 - Zeile 59 siehe Spalte 6, Zeile 41 - Spalte 8, Zeile 19 ---	1-5,7-11
Y	EP 0 316 626 A (DORNIER GMBH) 24. Mai 1989 siehe Spalte 3, letzte Zeile - Spalte 4, letzte Zeile; Ansprüche 1,2,5,7; Abbildungen 1-3 siehe Spalte 2, Zeile 48 - Zeile 54 ---	1-5,7-11
Y	NGUYEN T V ET AL: "A WATER AND HEAT MANAGEMENT MODEL FOR PROTON-EXCHANGE-MEMBRANE FUELS CELLS" JOURNAL OF THE ELECTROCHEMICAL SOCIETY, Bd. 140, Nr. 8, 1. August 1993, Seiten 2178-2186, XP000403645 siehe Seite 2182, linke Spalte, letzter Absatz - rechte Spalte, Absatz 2; Abbildung 3 siehe Seite 2184, linke Spalte, Absatz 2 ---	1-5,7-11
A	THOMAS A. ZAWODZINSKI ET AL: "A Comparative Study of Water Uptake By and Transport Through Ionomeric Fuel Cell Membranes" JOURNAL OF THE ELECTROCHEMICAL SOCIETY, Bd. 140, Nr. 7, Juli 1993, MANCHESTER, NEW HAMPSHIRE US, Seiten 1981-1985, XP002051331 siehe Seite 1982, linke Spalte, Absatz 5 siehe Seite 1981, linke Spalte, Absatz 1 ---	1,7
	---	

-/--

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	THOMAS A. ZAWODZINSKI ET AL: "Water Uptake by and Transport Through Nafion 117 Membranes" JOURNAL OF THE ELECTROCHEMICAL SOCIETY, Bd. 140, Nr. 4, April 1993, MANCHESTER, NEW HAMPSHIRE US, Seiten 1041-1047, XP002051332 siehe Seite 1041, linke Spalte, Absatz 1 siehe Seite 1042, rechte Spalte, Absatz 2 siehe Seite 1043, rechte Spalte, Absatz 2 ---	1-3,7-9
A	US 5 468 574 A (EHRENBERG SCOTT G ET AL) 21.November 1995 siehe Spalte 10, Zeile 5 - Zeile 26 ---	1-3,7-9
A	ZAHREDDINE C ET AL: "THE CONDUCTIVITY OF THE NOVEL PTFE POLYMER ELECTROLYTES" SOLID STATE IONICS, Bd. 58, Nr. 1/02, 1.November 1992, Seiten 185-187, XP000414571 siehe Seite 185, linke Spalte, Absatz 1 siehe Seite 185, rechte Spalte, Absatz 2 siehe Seite 186, linke Spalte, Absatz 2 ---	1,7
A	ROTA M ET AL: "IN-SITU MEMBRANE RESISTANCE MEASUREMENTS IN PEFC AS AN INDICATION OF INHOMOGENEOUS WATER DISTRIBUTION IN THE MEMBRANE" EXTENDED ABSTRACTS SPRING MEETING MAY 21/26 ST LOUIS MISSOURI US, Bd. 95/1, 1995, Seite 718 XP000551381 siehe Seite 718, linke Spalte, Absatz 2 ---	1,7
A	BERNARDI D M: "WATER-BALANCE CALCULATIONS FOR SOLID-POLYMER-ELECTROLYTE FUEL CELLS" JOURNAL OF THE ELECTROCHEMICAL SOCIETY, Bd. 137, Nr. 11, November 1990, Seiten 3344-3350, XP000606168 siehe Seite 3349, rechte Spalte, letzter Absatz ---	4
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 013, no. 220 (E-762), 23.Mai 1989 -& JP 01 031353 A (SANYO ELECTRIC CO LTD), 1.Februar 1989, siehe Zusammenfassung ---	1
E	DE 196 48 995 A (MAGNET MOTOR GMBH) 10.April 1997 siehe das ganze Dokument ---	1-12
6 E	DE 196 41 143 A (MAGNET MOTOR GMBH) 17.April 1997 siehe Ansprüche 1,19,20,22-30 -----	1-12

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 97/01793

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0743693 A	20-11-96	JP 8315839 A	29-11-96
		CA 2171380 A	19-11-96
EP 0316626 A	24-05-89	DE 3738370 C	13-04-89
		DE 3887456 D	10-03-94
US 5468574 A	21-11-95	AU 2644395 A	18-12-95
		CA 2190848 A	30-11-95
		EP 0763070 A	19-03-97
		WO 9532236 A	30-11-95
		US 5679482 A	21-10-97
DE 19648995 A	10-04-97	DE 19641143 A	17-04-97
DE 19641143 A	17-04-97	DE 19648995 A	10-04-97